

# エレクトロルミネッセント素子の製造方法

## BACKGROUND OF THE INVENTION

### Field of the Invention

本発明は、発光層が印刷法によりパターン形成されたエレクトロルミネッセント（以下ELと略称する場合がある。）素子の製造方法に関するものである。

### Description of the Related Art

EL素子は、対向する電極から注入された正孔および電子が発光層内で結合し、そのエネルギーで発光層中の蛍光物質を励起し、蛍光物質に応じた色の発光を行うものであり、自発光の面状表示素子として注目されている。その中でも、有機物質を発光材料として用いた有機薄膜ELディスプレイは、印加電圧が10V弱であっても高輝度な発光が実現するなど発光効率が高く、単純な素子構造で発光が可能で、特定のパターンを発光表示させる広告その他低価格の簡易表示ディスプレイへの応用が期待されている。

このようなEL素子を用いたディスプレイの製造にあっては、電極層や有機EL層のパターニングが通常なされている。このEL素子のパターニング方法としては、発光材料をシャドウマスクを介して蒸着する方法、インクジェットによる塗りわけ方法等がある。しかしながら、これら的方法では、製造工程の簡便さ、材料の利用効率の低さ、最適膜厚への薄層化に問題が残る。

前者の蒸着法は、シャドウマスクのパターンを微細にすればするほどシャドウマスクの薄層化が要求されシャドウマスクの微細加工が困難であった。さらにシャドウマスクの伸び縮みや歪み、蒸着の回り込みなどによって正確な蒸着成膜が困難であるため高精度な真空装置が必須でありコスト面でも問題がある。

さらに後者のインクジェット法は、パターニングを補助する構造物や塗工液を塗布する基材上に、前処理を施す必要があるなど、製造工程の簡便さに問題がある。

特に、これらの問題点は、EL素子をフルカラー化する場合、すなわち複数色の発光層を形成しなければならない場合に、大きな問題となっていた。

## SUMMARY OF THE INVENTION

本発明は、上記問題点に鑑みてなされたものであり、複数の発光層を有するE L素子を製造する際に、薄膜でかつ均一な膜厚の発光層を形成することができ、さらに製造工程を簡略化することが可能なE L素子の製造方法を提供することを主目的とするものである。

上記目的を達成するために、本発明においては、E L素子を構成する発光層を印刷方式で成膜し、上記発光層を形成するための発光層形成用塗工液の粘度が、0.5 c P以上500 c P以下であることを特徴とするE L素子の製造方法を提供する。発光層を印刷方式で成膜することにより、製造工程が簡便化され、製造効率が向上する。さらに発光層形成用塗工液の粘度を上記の範囲のものとすることにより、塗工液が基材上で濡れ広がり易くなり、発光層の膜厚の薄層化が可能となる。

上記発明においては、上記印刷方式は凹版印刷であることが好ましい。凹版印刷では、版の深さが膜厚を制御する一要因となり、版の深さを調節することで発光層の膜厚の薄層化を容易とすることができるからである。

上記発明においては、上記凹版の溝またはセルの深さが、500オングストローム～1mmの範囲内であることが好ましい。凹版印刷では塗工液の粘度と凹版の溝またはセルの深さ等が膜厚を制御する要因である。従って上記粘度範囲の塗工液とあわせて、溝またはセルの深さを上記範囲とすることで膜厚の均一化、薄層化を可能とすることができますからである。

上記発明においては、前記凹版の発光層形成領域が複数のセルに分割されて形成されていることが好ましい。

上記発明においては、印刷版上の溝またはセルの集団の全面積が、基材上に形成される発光層の面積より小さく形成されていることが好ましい。このように溝またはセルの集団の全面積を基材上に形成される発光層の面積より小さく形成することにより、印刷後基材上で濡れ広がることにより、所定の膜厚、膜質を有する発光層を形成することができるからである。

上記発明においては、上記印刷方式が、印刷版から基材に発光層形成用塗工液を直接印刷する方式、もしくは印刷版から転写体に発光層形成用塗工液を転写させ、転写体上の発光層形成用塗工液を基材上に印刷する方式のいずれかの印刷方式が用いられる。本発明においては、このように転写体を用いた方式であっても適用可能である。

上記発明においては、上記印刷方式で用いる印刷版、転写体、基材および圧洞の少なくとも1つが、弾性体であることが好ましい。これは印刷版から基材に印刷する際、例えば基材上に凹凸が形成されている場合であっても、印刷版が基材のいずれか一方が弾性体であるので、基材上への印刷を可能とすることができるからであり、この点は転写体を用いた場合も同様であるからである。

上記発明においては、2色以上の発光層形成用塗工液の塗り分けが可能である。これによりフルカラーのEL素子の製造も可能とすることができます。

上記発明においては、2色以上の上記発光層を印刷方式で形成する際、先に印刷された全ての発光層形成用塗工液が固化した後、塗布部を保護材で覆い、次いで後の発光層形成用塗工液を印刷するようにしてもよい。この方法を用いると、後の塗工液が塗布される際、先に塗布された塗布部が保護層で覆われていることから、この塗布部を印刷版などで傷つけることなく2色以上の発光層を不具合無くパターニングすることが可能となるからである。

上記発明においては、2色以上の上記発光層を印刷方式で形成する際、先に印刷された全ての発光層形成用塗工液が固化する前に後の発光層形成用塗工液を印刷するようにしてもよい。この方法を用いると、後の塗工液が塗布される際、先に塗布された全ての塗工液が完全に固化していないため、先に塗布された塗工液を印刷版などで傷つけることなく2色以上の発光層をパターニングすることが可能となるからである。

本発明によれば、発光層を印刷方式で成膜することにより、製造工程が簡便化され、製造効率が向上する。さらに発光層形成用塗工液の粘度を上記の範囲のものとすることにより、塗工液が基材上で濡れ広がり易くなり、発光層の膜厚の薄層化が可能であるという効果を奏する。

#### BRIEF DESCRIPTION OF THE DRAWINGS

図1は、本発明に用いられる凹版のパターンを説明するための概略平面図である。

図2は、本発明に用いられる印刷装置の一例を示す概略側面図である。

#### DESCRIPTION OF THE PREFERRED EMBODIMENT

本発明のEL素子の製造方法は、EL素子を構成する発光層を印刷方式で成膜し、上記発光層を形成するための発光層形成用塗工液の粘度が、0.5 cP以上500 cP以下であることを特徴とするものであり、発光層を印刷方式で成膜する点、およびその際の発光層形成用塗工液の粘度が上述したように極めて低い粘度とした点、さらにはこのような低い粘度の塗工液が濡れ広がることにより均一な薄膜状の発光層が形成できる点に大きな特徴を有するものである。以下、このような本発明のEL素子の製造方法について具体的に説明する。

##### (印刷方式)

まず、本発明に用いられる印刷方式について説明する。一般に、印刷方式は用いる印刷版の形態によって、凸版、凹版、平版、孔版といった種類を挙げができるが、本発明においては、上述したような粘度範囲の発光層形成用塗工液を用いることができる印刷方式であれば、いかなる印刷方式を用いてもよい。しかしながら、得られる発光層の膜厚の制御が容易である点から、凹版を用いた凹版印刷方式を用いることが好ましい。そして、凹版印刷方式の中でも、得られる発光層の精度の面を考慮すると、グラビア印刷を用いることが特に好ましい。

このように凹版印刷方式を用いた場合、本発明においては、その凹版の溝またはセルの深さが500オングストローム～1mmの範囲内、特に500オングストローム～500 $\mu$ mの範囲内であることが好ましい。凹版の溝またはセルの深さをこ

の範囲内とすることにより、得られる発光層の膜厚の最適化が図れるからである。

本発明において上述したように凹版を用いて印刷する場合の凹版の形状としては、印刷版によりライン状のパターンを得ることを目的とする場合と、エリア状のパターンを得ることを目的とする場合とで大きく異なる。

例えば、ライン状のパターンを得ることを目的とする場合の凹版の溝またはセルの幅は、 $1\text{ }\mu\text{m} \sim 1\text{ mm}$ の範囲内、特に $1\text{ }\mu\text{m} \sim 300\text{ }\mu\text{m}$ の範囲内であることが好ましい。凹版の溝またはセルの幅をこの範囲にすることにより、得られる発光層のパターンの線幅を要求される線幅に調節することが可能となり、各パターンを緻密に形成することができからである。

一方、エリア状のパターンを得ることを目的とする場合は、凹版の溝またはセルの幅が、 $1\text{ }\mu\text{m} \sim 1\text{ mm}$ の範囲内、特に $1\text{ }\mu\text{m} \sim 300\text{ }\mu\text{m}$ の範囲内であることが好ましい。溝またはセルの幅を上記範囲内とすることにより、基材上に印刷された発光層形成用塗工液が濡れ広がって速なることにより、エリア状のパターンを欠損無く形成することができるからである。

また、ライン状のパターンを得るための凹版における溝またはセル間の間隔としては、 $1\text{ }\mu\text{m}$ 以上であることが好ましい。これは凹版の溝またはセル間の間隔をこの範囲内にすることにより、パターン状に形成された発光層の混色等の不具合を回避できるからである。

一方、エリア状のパターンを形成することを目的とする場合は、凹版の溝またはセル間の間隔が、 $1\text{ }\mu\text{m} \sim 10\text{ mm}$ の範囲内、特に $1\text{ }\mu\text{m} \sim 1\text{ mm}$ の範囲内とすることが好ましい。溝またはセル間の間隔を上記範囲内とすることにより、印刷された発光層形成用塗工液が濡れ広がり連なることが可能であり、欠損の無いエリア状のパターンを得ることができますからである。

本発明においては、図1に示すように、基材上に形成される発光層に対応する凹版の発光層形成領域が複数のセルに分割されて形成されていることが好ましい。すなわち、図1Aに示すような印刷版上のパターンを用いて、図1Bに示すような基材上の発光層を形成することが好ましいのである。

また、本発明においては、上記印刷版上の溝またはセルの集団の全面積が、基材上に形成される発光層の面積より小さく形成されていることが好ましい。このよう

に溝またはセルの集団の全面積を基材上に形成される発光層の面積より小さく形成することにより、印刷後基材上で漏れ広がることにより、所定の膜厚、膜質を有する発光層を形成することが可能となるからである。

この際、基材上に形成される発光層の面積を100とした場合の、印刷版上の溝またはセルの集団の全面積は、10～98の範囲内、特に30～98の範囲内とすることが好ましい。

本発明に用いられる印刷版におけるセルの形状は、特に限定されるものではなく、四角形形状、三角形形状、五角形形状、六角形形状、円形状、半円形状、斜線版等を用いることが可能である。

印刷版の製版方式は、コンベンショナルグラビア、網グラビア、電子彫刻グラビア、ミルのいずれの方式であってもよい。

本発明における印刷方式においては、基材上に発光層形成用塗工液を印刷版から直接印刷する方式であってもよく、また印刷版から転写体に発光層形成用塗工液を転写させ、転写体上の発光層形成用塗工液を基材上に印刷する方式であってもよい。この際用いられる転写体は、板状のものでも円筒状のものであってもよい。

さらに、本発明に用いられる印刷方式においては、印刷版もしくは被印刷体である基材、転写体、および圧胴のうち少なくとも1つは弾性体であることが好ましい。発光層を印刷法で成膜する場合、基材上に電極層や絶縁層といった層が形成された状態で発光層を印刷する場合が多い。このような状態で印刷する際、印刷版および基材のいずれも弾性を有さない場合は、基材上の凹凸に対応することができず、精度の良好な印刷を行うことができないからである。

なお、上述したように、本発明においては、印刷版から直接基材に印刷する方式のみならず、印刷版から転写体を経て基材に印刷を行う方式を含むものであるが、この場合は、印刷版もしくは被印刷体である基材、転写体、および圧胴のうち少なくとも1つは、弾性体であることが好ましい。

ここで、本発明でいう弾性体とは、JIS規格（JIS A）で10°～90°の硬度を示すものである。

印刷版、圧胴もしくは転写体が弾性体である場合は、上述したような弾性を有する材質、例えば合成ゴム（アクリロニトリルブタジエンゴム等）に充填剤、可塑剤

を加えたもの等からなる印刷版、圧胴もしくは転写体が用いられる。

一方、基材が弾性体である場合としては、基材が樹脂製の基材である場合を挙げることができる。この際、用いることができる樹脂としては、例えばポリエチレンテレフタレート（P E T）等を挙げることができる。

なお、本発明においては、印刷版、転写体、および圧胴は、上述した粘度範囲の発光層形成用塗工液を用いた印刷方式が行えれば、ロール状、板状のいずれであってもかまわない。さらに基材に関しては、ロール状の支持体にシート状の基材を巻きつけたものを用いて印刷を行ってもよい。

なお、図2は本発明において用いることができる印刷機の仕組みの一例を図示したものである。まず、塗工液の供給部であるインキパン1に、ロール状の版胴2をその一部が浸される位置に配置する。

この版胴2は、上述したようにロール状のものであっても板状のものであってもよい。具体的には、金属ロール、ゴムロール等を挙げることができ、形成する材料としては、合成ゴム（アクリロニトリルブタジエンゴム等）、セラミックス、エボナイト、導電性材料等を挙げることができる。

版の溝またはセル以外の部分が撥水性を有していてもよい。これによりドクターによる塗工液の除去が円滑になる。

この版胴2には、余分な塗工液を除去するためのドクター3が配置されている。このドクター3の材質としては、ステンレス、合成ゴム（アクリロニトリルブタジエンゴム等）、セラミックス、エボナイト、導電性材料等を挙げることができる。

上記版胴2に付着した塗工液は、図1に示すように転写体4に転写される。ここで転写体4とは、版胴2上の塗工液を基材に印刷させるロール状または板状のものをいい、金属ロール、ゴムロール、アニロックスロール（彫刻ロール）等を挙げることができる。

そして、転写体4に転写された塗工液は、被印刷体である基材5に印刷される。この際、基材5は、転写体4と圧胴6との間を通過するように配置されている。

ここで圧胴6とは、版胴または転写体に基材を押圧するロールまたは板状のものをいい、金属ロール、ゴムロール等を挙げることができる。材料としては、合成ゴム（例えばアクリロニトリルブタジエンゴム）等を挙げることができる。

### (発光層形成用塗工液)

次に、本発明に用いられる発光層形成用塗工液について説明する。本発明においては、発光層の均一化、薄層化が要求される。そのため塗工液は薄く濡れ広がり易い特性を有する必要がある。従ってこの要求を満たすためには塗工液の粘度は低くなければならない。

このような観点から、本発明においては、上述したような印刷方式で複数の発光層を形成する際、各発光層形成用塗工液の粘度範囲が、0.5 cP～500 cPの範囲内、特に0.5 cP～200 cPの範囲内であることが好ましい。発光層形成用塗工液の粘度が、上記範囲より低い場合は、後述する発光材料の濃度が低くなり、均一な膜厚の発光層を得ることができなくなるからである。また、粘度が上記範囲より高い場合は、塗布された領域内で十分に濡れ広がらず均一な膜厚を確保することができない可能性があり、また発光層の薄層化が困難になる場合があるからである。

また塗布された領域内で十分に広がり均一な膜を得るために塗工液に使用されている溶媒の沸点が60°C～400°C、好ましくは90°C～300°Cの範囲内のものを少なくとも1つ含む。これにより塗工液が均一にレベリングされる。100°C以下の低沸点溶媒においても、その溶媒雰囲気下にすることで塗工液が均一にレベリングされる。基材に塗工液が転移した後、十分にレベリングしてから乾燥工程を行う。

また、本発明に用いられる発光層形成用塗工液の表面張力は、10～70 mN/mの範囲内とすることが好ましい。この範囲とすることにより、後述する基材との接触角を所定の範囲とすることができますからである。

このような本発明に用いられる発光層形成用塗工液は、通常、発光材料、溶媒、およびドーピング剤等の添加剤により構成されるものであり、また、複数色の発光層が形成されるものであるので、複数種類の発光層形成用塗工液が用いられる。以下、これら発光層形成用塗工液を構成する各材料について説明する。

#### A. 発光材料

本発明に用いられる発光材料としては、色素系材料、金属錯体系材料、および高分子系材料を挙げることができる。

## 1. 色素系材料

色素系材料としては、シクロベンダミン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、トリフェニルアミン誘導体、オキサジアゾール誘導体、ピラゾロキノリン誘導体、ジスチリルベンゼン誘導体、ジスチリルアリーレン誘導体、シロール誘導体、チオフェン環化合物、ピリジン環化合物、ペリノン誘導体、ペリレン誘導体、オリゴチオフェン誘導体、トリフマニルアミン誘導体、オキサジアゾールダイマー、ピラゾリンダイマー等を挙げることができる。

## 2. 金属錯体系材料

金属錯体系材料としては、アルミキノリノール錯体、ベンゾキノリノールベリリウム錯体、ベンゾオキサゾール亜鉛錯体、ベンゾチアゾール亜鉛錯体、アゾメチル亜鉛錯体、ポルフィリン亜鉛錯体、ユーロピウム錯体等、中心金属に、Al、Zn、Be等または、Tb、Eu、Dy等の希土類金属を有し、配位子にオキサジアゾール、チアジアゾール、フェニルピリジン、フェニルベンゾイミダゾール、キノリン構造等を有する金属錯体等を挙げることができる。

## 3. 高分子系材料

高分子系の材料としては、ポリパラフェニレンビニレン誘導体、ポリチオフェン誘導体、ポリパラフェニレン誘導体、ポリシラン誘導体、ポリアセチレン誘導体等、ポリフルオレン誘導体、ポリビニルカルバゾール誘導体、上記色素系、金属錯体系発光材料を高分子化したもの等を挙げることができる。

本発明においては、上記粘度範囲の発光層形成用塗工液で印刷方式により発光層の薄層化が可能であるという利点を活かすという観点から、発光材料として上記高分子系材料を用いたものがより好ましい。

## B. 溶媒

上述した発光材料を溶解もしくは分散させ、発光層形成用塗工液とする溶媒としては、上述した発光材料を溶解もしくは分散し、かつ所定の粘度、表面張力、接触角、および乾燥性とすることができる溶媒であれば特に限定されるものではない。

具体的には、水、DMF、DMSO、アルコール、ベンゼン、トルエン、キシリレンの各異性体、トリメチルベンゼンの各異性体、テトラメチルベンゼン、テトラリン、p-シメン、クメン、エチルベンゼン、ジェチルベンゼンの各異性体、ブチル

ベンゼン、クロロベンゼン、ジクロロベンゼンの各異性体、アニソール、フェニートール、ブチルフェニルエーテル、テトラヒドロフラン、2-ブタノン、1, 4-ジオキサシ、ジエチルエーテル、ジイソプロピルエーテル、ジフェニルエーテル、ジペンジルエーテル、ジグライム等をはじめとするエーテル系溶媒、ジクロロメタン、1, 1-ジクロロエタン、1, 2-ジクロロエタン、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレン、クロロホルム、四塩化炭素、1-クロロナフタレン等のクロル系溶媒、シクロヘキサン等が挙げられるが、この他でも条件を満たす溶媒であれば使用可能であり、2種類以上の混合溶媒であっても良い。

本発明においては、発光層形成用塗工液を基材（もしくは透明電極層）上に印刷した場合の発光層形成用塗工液の接触角も、好適な印刷を得るために重要な要素となる。この場合の接触角としては、例えば印刷法によりライン状の発光層を形成する場合は、 $5^{\circ} \sim 170^{\circ}$ 、好ましくは $5^{\circ} \sim 140^{\circ}$ の範囲内であり、エリア状の発光層を形成する場合の接触角は、 $30^{\circ}$ 以下、特に $20^{\circ}$ 以下とすることが好ましい。

このような接触角は基材の材料と発光層形成用塗工液を構成する溶媒との関係により決定されるものである。この点を考慮すると、本発明における発光層形成用塗工液に用いられる溶媒としては、ライン状の発光層を形成するための発光層形成用塗工液の場合は、トルエンを挙げることが可能であり、一方、エリア状の発光層を形成する場合は、キシレンを挙げることができる。

### C. 添加剤

本発明に用いられる発光層形成用塗工液には、上述したような発光材料および溶媒に加えて種々の添加剤を添加することが可能である。例えば、発光層中の発光効率の向上、発光波長を変化させる等の目的でドーピング材料が添加される場合がある。このドーピング材料としては例えば、ペリレン誘導体、クマリン誘導体、ルブレン誘導体、キナクリドン誘導体、スクアリウム誘導体、ポルフィレン誘導体、スチリル系色素、テトラセン誘導体、ピラゾリン誘導体、デカシクレン、フェノキサン等を挙げることができる。

また、必要に応じて発光層形成用塗工液の粘度、表面張力、接触角または乾燥性を調製できる添加剤等を添加してもよい。

### (発光層)

本発明においては、上述した発光層形成用塗工液を用いて、印刷法により発光層が形成される。本発明における発光層は、1種類の発光層であってもよく、また複数色の発光層が形成されてもよい。

本発明においては、上記発光層の膜厚が、100オングストローム～10000オングストロームの範囲内、好ましくは100オングストローム～2000オングストロームの範囲内となるように形成される。

また、上記発光層は、上述したようにライン状に形成される場合と、エリア状に形成される場合とがある。本発明においては、ライン状に形成されるとは、線幅が $300\text{ }\mu\text{m}$ 以下の場合をいう。一方、本発明においてエリア状に形成されるとは、線幅が $300\text{ }\mu\text{m}$ を超える場合をいう。

### (EL素子)

本発明のEL素子の製造方法は、上述したような印刷方式により上述した発光層形成用塗工液を用いて発光層を形成するところに特徴を有するものであるが、本発明のEL素子の製造方法により得られるEL素子は、このような発光層以外にも種々の有機EL層、電極等により構成されるものである。以下、これらについて説明する。

#### 1. 基材

本発明のEL素子の製造方法により得られるEL素子は、上述したような発光層等が基材上に形成されてなるものである。このような基材としては、透明性が高いものであれば特に限定されるものではなく、ガラス等の無機材料や、透明樹脂等を用いることができる。

上記透明樹脂としては、フィルム状に成形が可能であれば特に限定されるものではないが、透明性が高く、耐溶媒性、耐熱性の比較的高い高分子材料が好ましい。また必要に応じて水蒸気、酸素等のガスを遮断するガスバリアー性を有する基材を用いても良い。具体的には、フッ素系樹脂、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリ塩化ビニル、ポリフッ化ビニル、ポリスチレン、ABS樹脂、ポリアミド、ポリアセタール、ポリエステル、ポリカーボネート、変性ポリフェニレンエーテル、ポリスルホン、ポリアリレート、ポリエーテルイミド、ポリエーテルサルファン、ポリ

アミドイミド、ポリイミド、ポリフェニレンスルフィド、液晶性ポリエステル、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、ポリミクロイキシレンジメチレンテレフタレート、ポリオキシメチレン、ポリエーテルスルホン、ポリエーテルエーテルケトン、ポリアクリレート、アクリロニトリルースチレン樹脂、フェノール樹脂、尿素樹脂、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、エポキシ樹脂、ポリウレタン、シリコーン樹脂、非晶質ポリオレフィン等が挙げられるが、この他でも条件を満たす高分子材料であれば使用可能であり、2種類以上の共重合体であっても良い。

本発明においては、印刷版もしくは転写体を用いて印刷を行う場合に、上述したように基材に弾性が求められる場合がある。この際、用いることができる樹脂としては、印刷方式の項で説明した樹脂を挙げることができる

## 2. 電極層

本発明で得られるEL素子は、基材上に形成される第1電極層、および上述した発光層等の有機EL層上に形成される第2電極層を有するものである。このような電極層は、陽極および陰極からなり、陽極および陰極のどちらか一方が、透明または、半透明であり、陽極としては、正孔が注入し易いように仕事関数の大きい導電性材料が好ましい。また、複数の材料を混合させてもよい。いずれの電極層も、抵抗はできるだけ小さいものが好ましく、一般には、金属材料が用いられるが、有機物あるいは無機化合物を用いてもよい。

好ましい陽極材料としては、例えば、ITO、酸化インジウム、金が挙げられる。好ましい陰極材料としては、例えばマグネシウム合金(MgAg他)、アルミニウム合金(AlLi、AlCa、AlMg他)、金属カルシウムおよび仕事関数の小さい金属が挙げられる。

## 3. 発光層以外の有機EL層

本発明で得られるEL素子は、上述した発光層の他、有機EL層として、バッファー層、正孔輸送層、正孔注入層、電子輸送層、電子注入層等が組み合わされていてもよい。

## 4. 絶縁層

本発明により得られるEL素子には、基材上に形成されている第一電極層のパ

ーニングしたエッジ部分および素子の非発光部分を覆い、発光に不要な部分での短絡を防ぐために、絶縁層を発光部分が開口となるように予め設けておいてもよい。このようにすることにより、素子の短絡等による欠陥を低減し、長寿命で安定発光する素子が得られる。

このような絶縁層は、通常知られている通り、例えば、UV硬化性の樹脂材料等を用いてパターン形成することができる。

#### (EL素子の製造方法)

最後に、本発明のEL素子の製造方法における一般的な工程の流れについて説明する。

まず、予め第1電極層が所定の形状にパターニングされた基材上に、必要であれば、第1電極層のエッジ部分を覆うように絶縁層を形成する。次いで、必要に応じてバッファー層等の有機EL層を形成した後、印刷方式を用いて複数色の発光層形成用塗工液を各色ごとに印刷する。

この際の印刷方式については、上述したように特に限定させるものではないが、凹版を用いた印刷方法が好適に用いられる。このように凹版を用いた場合は、版の凹部に上述した粘度の発光層形成用塗工液をディッピング等により付着させ、その後余分な塗工液はドクターブレード等を用いてかき取った後に、基材上に印刷される。

本発明においては、2色以上の発光層を形成する発光層形成用塗工液を基材上に印刷することにより、2色以上の発光層形成用塗工液の塗り分けを行なうことができる。これにより、最終的にはフルカラーのEL素子を製造することが可能となる。

このように、2色以上発光層を形成する発光層形成用塗工液を連続して印刷する場合は、先に印刷された発光層を傷つけることなく次の印刷を行う必要がある。この際、以下に示すような二つの方法を用いることが好ましい。

第1の方法は、2色以上の上記発光層を印刷方式で形成する際、先に印刷された全ての発光層形成用塗工液が固化した後、塗布部を保護材で覆い、次いで後の発光層形成用塗工液を印刷する方法である。ここで用いられる保護材は、後の発光層形成用塗工液が塗布される領域に形成されないようにパターニングすることができれば、いかなる材料もしくは形成方法で形成されたものであってもよい。

本発明においては、先に塗布し、固化後の塗布部に、例えばフィルム状の保護材を付着させ、後の発光層形成用塗工液を塗布した後に剥離する方法等を挙げることができる。

このような保護材に用いることができる材料としては、フィルム上に成型が可能であれば特に限定されるものではないが、伸び縮みや歪みがない、または比較的小さい高分子材料が好ましい。具体的には、フッ素系樹脂、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリ塩化ビニル、ポリフッ化ビニル、ポリスチレン、ABS樹脂、ポリアミド、ポリアセタール、ポリエステル、ポリカーボネート、変性ポリフェニレンエーテル、ポリスルホン、ポリアリレート、ポリエーテルイミド、ポリエーテルサルファン、ポリアミドイミド、ポリイミド、ポリフェニレンスルフィド、液晶性ポリエステル、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、ポリミクロイキシレンジメチレンテレフタレート、ポリオキシメチレン、ポリエーテルスルホン、ポリエーテルエーテルケトン、ポリアクリレート、アクリロニトリルースチレン樹脂、フェノール樹脂、尿素樹脂、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、エポキシ樹脂、ポリウレタン、シリコーン樹脂、非晶質ポリオレフィン等が挙げられるが、この他でも条件を満たす高分子材料であれば使用可能であり、2種類以上の共重合体であっても良い。

このような方法を用いると、後の塗工液が塗布される際、先に塗布された塗布部が保護材で覆われていることから、この塗布部を印刷版などで傷つけることなく2色以上の発光層を不具合無くパターニングすることが可能となる。

一方、第2の方法は、先に印刷された全ての塗工液が固化する前に、後の塗工液を印刷するようにする方法である。先に印刷された塗工液が完全に固化した後に、次の印刷を開始すると、印刷版が接触した部分が剥がれ落ちる等の不具合が生じる可能性があるからである。

なお、本発明において、「発光層形成用塗工液が固化する前」とは、乾燥工程前で、塗工液がレベリングすることが可能な状態を示すものである。一方、「発光層形成用塗工液が固化した後」とは、乾燥工程を行なった後の状態をいう。全ての乾燥工程は、塗工液が十分にレベリングしてから行う。

このようにして発光層を形成した後、表示領域を覆うように第2電極層を形成し、

最後に防湿のための封止を行い、E L素子が完成する。

なお、本発明は、上記実施形態に限定されるものではない。上記実施形態は例示であり、本発明の特許請求の範囲に記載された技術的思想と実質的に同一な構成を有し、同様な作用効果を奏するものは、いかなるものであっても本発明の技術的範囲に包含される。

#### EXAMPLES

以下に実施例を示し、本発明をさらに説明する。

##### 【実施例 1】

###### <発光層形成用塗工液の調製>

高分子蛍光体1をキシレンに溶解させ、粘度が0.5 cPとなるように調整して発光層形成用塗工液1を調製した。さらに高分子蛍光体1と異なる発光色を示す高分子蛍光体2をキシレンに溶解させ、粘度が0.5 cPとなるように調整して発光層形成用塗工液2を調製した。ここで高分子蛍光体1とは、ポリビニルカルバゾール+クマリン誘導体からなる発光材料を示し、高分子蛍光体2とは、ポリビニルカルバゾール+ペリレン誘導体からなる発光材料を示す。

###### <素子の作製>

150mm角、厚さ400μm、表面抵抗率40Ω（ジオマテック（株）製）のITO成膜ポリカーボネート基材に、スピンドルコーターを用いて正孔注入層としてポリスチレンスルフォネイト／ポリ（3，4）エチレンジオキシチオフェン（PSS／PEDOT）を100nm膜厚で成膜した。さらにこの成膜されたフィルムを減圧下100℃で1時間乾燥した。

乾燥後、まず発光材料の発光層形成用塗工液1を、簡易グラビア印刷機（GP-10、クラボウ社製）で、版溝幅1mm、土手幅10mm、版深1mmの印刷版を用い、グラビア印刷法によって、30mm×60mm、膜厚100nmで成膜した。

その後、連続して上記発光層形成用塗工液1と異なる発光材料を用いた発光層形成用塗工液2を一回目に塗布された部分以外の領域に成膜した。この際、発光層形成用塗工液1が完全に固化する前に発光層形成用塗工液2の印刷（塗布）を行った。

その結果、同 150 mm 角 ITO 成膜ポリカーボネート上に異なる発光色を示す層を各 30 mm × 60 mm、膜厚 100 nm で塗り分け成膜した。

さらに、この発光層塗り分けフィルムを減圧下 80 °C で 1 時間乾燥した後、第 2 電極層としてカルシウムを 5 nm 成膜し、その上に銀を 250 nm 真空蒸着して EL 素子を作製した。

#### 【実施例 2】

##### <発光層形成用塗工液の調製>

上記高分子蛍光体 1 をキシレンに溶解させ、粘度が 250 cP となるように調整して発光層形成用塗工液 3 を調製した。さらに上記高分子蛍光体 2 をキシレンに溶解させ、粘度が 250 cP となるように調整して発光層形成用塗工液 4 を得た。

##### <素子の作製>

150 mm 角、厚さ 400 μm、表面抵抗率 40 Ω (ジオマテック (株) 製) の ITO 成膜ポリカーボネート基材に、スピンドルコーターを用いて正孔注入層としてポリスチレンスルフォネイト／ポリ (3, 4) エチレンジオキシチオフェン (PSS / PEDOT) を 100 nm 成膜した。さらにこの成膜されたフィルムを減圧下 100 °C で 1 時間乾燥した。

乾燥後、まず発光材料の発光層形成用塗工液 3 を、簡易グラビア印刷機 (GP-10、クラボウ社製) で、版溝幅 8 μm、土手幅 4 μm、版深 2 μm の印刷版を用いてグラビア印刷により、30 mm × 60 mm、膜厚 100 nm、で成膜した。次いで、上記発光層形成用塗工液 4 を一回目に塗布された部分以外へ成膜した。この際、発光層形成用塗工液 4 は、発光層形成用塗工液 3 が完全に固化する前に印刷された。

その結果、同 150 mm 角 ITO 成膜ポリカーボネート上に異なる発光色を示す層を各 30 mm × 60 mm、膜厚 100 nm で塗り分けされた。

さらにこの発光層塗り分けフィルムを減圧下 80 °C で 1 時間乾燥した後、第 2 電極層としてカルシウムを 5 nm 成膜し、その上に銀を 250 nm 真空蒸着して EL 素子を作製した。

#### 【実施例 3】

##### <発光層形成用塗工液の調製>

上記高分子蛍光体1をキシレンに溶解させ、粘度が500cPとなるように調整し、発光層形成用塗工液5を得た。さらに高分子蛍光体1と異なる発光色を示す高分子蛍光体2をキシレンに溶解させ、粘度が500cPとなるように調整し、発光層形成用塗工液6を得た。

#### <素子の作製>

150mm角、厚さ400μm、表面抵抗率40Ω（ジオマテック（株）製）のITO成膜ポリカーボネート基材に、スピンドルコーターを用いて正孔注入層としてポリスチレンスルフォネイト／ポリ（3，4）エチレンジオキシチオフェン（PSS／PEDOT）を100nm成膜した。さらにこの成膜されたフィルムを減圧下100℃で1時間乾燥した。乾燥後、まず発光層形成用塗工液5を、簡易グラビア印刷機（GP-10、クラボウ社製）で、版溝幅5μm、土手幅1μm、版深500オングストロームの印刷用版を用いてグラビア印刷により、30mm×60mm、膜厚100nmで成膜後、連続して上記の発光層形成用塗工液5の発光色と異なる発光材料の発光層形成用塗工液6を一回目に塗布された部分以外の領域に成膜した。その結果、同150mm角ITO成膜ポリカーボネート上に異なる発光色を示す層を各30mm×60mm、膜厚100nmで塗り分け成膜された。

さらに、この発光層塗り分けフィルムを減圧下80℃で1時間乾燥した後、第2電極層としてカルシウムを5nm成膜し、その上に銀を250nm真空蒸着してEL素子を作製した。

#### [比較例1]

#### <発光層形成用塗工液の調整>

上記高分子蛍光体1をキシレンに溶解させ、粘度が0.4cPとなるように調整して、発光層形成用塗工液7を得た。

#### <素子の作製>

150mm角、厚さ400μm、表面抵抗率40Ω（ジオマテック（株）製）のITO成膜ポリカーボネート基材に、スピンドルコーターを用いて正孔注入層としてポリスチレンスルフォネイト／ポリ（3，4）エチレンジオキシチオフェン（PSS／PEDOT）を100nm成膜した。さらにこの成膜されたフィルムを減圧下100℃で1時間乾燥した。乾燥後、まず発光層形成用塗工液7を、簡易グラビア印

刷機（G P - 1 0、クラボウ社製）で、版溝幅 1 mm、土手幅 5 mm、版深 2 mm の印刷版を用い、グラビア印刷により成膜した。発光層形成用塗工液 7 中の高分子蛍光体量が少ないため均一な発光層の膜が得られなかつた。

#### [比較例 2]

##### <発光層形成用塗工液の調製>

上記高分子蛍光体 1 をキシレンに溶解させ、粘度が 5 5 0 c P となるように調整して発光層形成用塗工液 8 を得た。

##### <素子の作製>

1 5 0 mm 角、厚さ 4 0 0  $\mu$ m、表面抵抗率 4 0  $\Omega$ （ジオマテック（株）製）の I T O 成膜ポリカーボネート基材に、スピンドルコーターを用いて正孔注入層としてポリスチレンスルフォネイト／ポリ（3, 4）エチレンジオキシチオフェン（P S S / P E D O T）を 1 0 0 nm 成膜した。さらにこの成膜されたフィルムを減圧下 1 0 0 °C で 1 時間乾燥した。乾燥後、まず上記発光層形成用塗工液 8 を、簡易グラビア印刷機（G P - 1 0、クラボウ社製）で、版溝幅 8  $\mu$ m、土手幅 1  $\mu$ m、版深 3 0 0 オングストロームを用いてグラビア印刷によって成膜した。発光層形成用塗工液 8 中の粘度が高いため、均一な発光層の膜が得られなかつた。